

SON-2296

PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In the Patent Application of

Yuko Fujihira et al

Group Art Unit: To Be Assigned

Serial No. To Be Assigned

Examiner: To Be Assigned

Filed: December 4, 2001

For: BIODEGRADABLE RESIN MATERIAL AND  
METHOD FOR PRODUCING THE SAME

CLAIM TO PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119

Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior applications filed in the following foreign country are hereby requested and the right of priority provided under 35 U.S.C. 119 is hereby claimed:

Japanese Patent Appl. No. P2000-372428 filed December 7, 2000

Japanese Patent Appl. No. P2000-372425 filed December 7, 2000

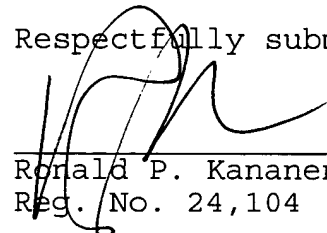
Japanese Patent Appl. No. P2000-372426 filed December 7, 2000

Japanese Patent Appl. No. P2000-372427 filed December 7, 2000

In support of this claim, filed herewith are certified copies of said original foreign applications.

Respectfully submitted,

Dated: December 4, 2001

  
\_\_\_\_\_  
Ronald P. Kananen  
Reg. No. 24,104

**RADER, FISHMAN & GRAUER P.L.L.C.**  
1233 20<sup>TH</sup> Street, NW, Suite 501  
Washington, DC 20036  
202-955-3750-Phone  
202-955-3751 - Fax  
Customer No. 23353



日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

# S01P1832 US  
4  
Jc872 U.S. PRO  
10/000367  
12/04/01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2000年12月 7日

出願番号

Application Number:

特願2000-372427

出願人

Applicant(s):

ソニー株式会社

2001年10月19日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造

出証番号 出証特2001-3092059

【書類名】 特許願

【整理番号】 0000864306

【提出日】 平成12年12月 7日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H05K 05/00

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社  
内

【氏名】 藤平 裕子

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社  
内

【氏名】 野口 勉

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号 ソニー株式会社  
内

【氏名】 森 浩之

【特許出願人】

【識別番号】 000002185

【氏名又は名称】 ソニー株式会社

【代表者】 出井 伸之

【代理人】

【識別番号】 100090527

【弁理士】

【氏名又は名称】 館野 千恵子

【連絡先】 0 3 - 5 7 3 1 - 9 0 8 1

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011084

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0010570

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 生分解性樹脂組成物、筐体材料、生分解性樹脂組成物の製造方法および生分解性樹脂組成物の弾性率向上方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 脂肪族系ポリエステル樹脂と有機系の造核剤と天然マイカとを少なくとも含有することを特徴とする生分解性樹脂組成物。

【請求項 2】 有機系の造核剤が、脂肪族カルボン酸アミドおよび脂肪族カルボン酸エステルから選ばれる一種または二種以上である請求項 1 記載の生分解性樹脂組成物。

【請求項 3】 脂肪族系ポリエステル樹脂に対する天然マイカの配合量が 5.0～20.0 重量%である請求項 1 記載の生分解性樹脂組成物。

【請求項 4】 脂肪族系ポリエステル樹脂に対する有機系の造核剤の配合量が 0.5～5.0 重量%である請求項 1 記載の生分解性樹脂組成物。

【請求項 5】 脂肪族系ポリエステル樹脂がポリ乳酸である請求項 1 記載の生分解性樹脂組成物。

【請求項 6】 加水分解を抑制する添加剤をさらに含む請求項 1 記載の生分解性樹脂組成物。

【請求項 7】 加水分解を抑制する添加剤がカルボジイミド化合物である請求項 6 記載の生分解性樹脂組成物。

【請求項 8】 加水分解を抑制する添加剤の配合量が脂肪族系ポリエステル樹脂量に対して 0.1～2.0 重量%である請求項 6 記載の生分解性樹脂組成物。

【請求項 9】 脂肪族系ポリエステル樹脂と有機系の造核剤と天然マイカとを少なくとも含有する生分解性樹脂組成物よりなることを特徴とする筐体材料。

【請求項 10】 脂肪族系ポリエステル樹脂と、該脂肪族系ポリエステル樹脂に対して 5.0～20.0 重量%の天然マイカと、有機系の造核剤とを 150～200℃で混練することを特徴とする生分解性樹脂組成物の製造方法。

【請求項 11】 脂肪族系ポリエステル樹脂と有機系の造核剤と天然マイカとを少なくとも含有する生分解性樹脂組成物を 80～130℃の加温下で、30

～ 1 8 0 秒間放置することを特徴とする生分解性樹脂組成物の弾性率向上方法。

【請求項 1 2】 脂肪族系ポリエステル樹脂と有機系の造核剤と天然マイカとを少なくとも含有する生分解性樹脂組成物を金型内に射出して射出成型物とし、次いで該金型内の前記射出成型物を 8 0 ～ 1 3 0 ℃で、3 0 ～ 1 8 0 秒間加温することを特徴とする生分解性樹脂組成物の弾性率向上方法。

【請求項 1 3】 脂肪族系ポリエステル樹脂と有機系の造核剤と天然マイカとを少なくとも含有する生分解性樹脂組成物を、高周波誘導加熱により内表面を昇温された金型内に射出して射出成型物とし、次いで該金型内の前記射出成型物を 8 0 ～ 1 3 0 ℃で、3 0 ～ 1 8 0 秒間加温することを特徴とする生分解性樹脂組成物の弾性率向上方法。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、脂肪族系ポリエステル樹脂を主成分とする弾性率の向上した生分解性樹脂組成物、この生分解性樹脂組成物からなる筐体材料、この生分解性樹脂組成物の製造方法および、この生分解性樹脂組成物の弾性率向上方法に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

「使用済み電気製品リサイクル法」が 2 0 0 1 年 4 月に施行されるが、現在、T V（テレビジョン）等の大型の電気製品を除いて、廃棄物を回収し、リサイクルすることは行なわれておらず、また法的規制もない。そのため、ほとんどの電気製品は廃棄時に不燃ゴミとして捨てられている。たとえ形状が小型でも、販売数が多い場合には全体としては多量の廃棄物を発生する結果となる。このことは、廃棄物処分場が不足している昨今、深刻な問題となっている。

【 0 0 0 3 】

よく行なわれている処理方法として、廃棄物をシュレッダー処理する方法がある。ところが、このシュレッダー処理は廃棄物の容積を減少させるだけであり、埋め立てれば、そのままの状態は何十年、何百年と残るため、基本的な解決にはならない。また、生態系にも影響を及ぼす恐れがある。仮に、シュレッダーダス

トをマテリアルリサイクルするにも、すべての部品が細かく粉砕されているため、例えば、有価値の素材（銅等）も、他の価値の低い素材と混合されてしまい、純度が落ち、回収効果が低下してしまう。

【 0 0 0 4 】

そこで、まず、電気製品の体積の大部分を占める筐体や構造体部分を生分解性素材で作製し、電子部品と基盤等と非生分解性部分とを、例えばビス止めや嵌めこみ構造として組み立てることにより、後で簡易に分けられるようにしておく。これにより、ある程度の解体処理で、リサイクルすべき部分と、そのまま廃棄できる部分とに分離し、これらを別々に処理することができる。

【 0 0 0 5 】

例えば、ラジオ、マイクロフォン、首掛けTV、キーボード、ウォークマン（登録商標名）、携帯電話、ラジカセ、イヤホンなどの筐体の最表面部分を生分解性素材で作製する。このように人体に接触する機会の多い部分を生分解性素材で作製しておくことで、合成樹脂よりも安全性の高い電気製品を提供することができる。

【 0 0 0 6 】

しかしながら、生分解性素材はどのような種類でも良いというわけではなく、電気製品の筐体、構造材として用いるには、それなりの物性が要求される。まず、60℃・80%RH（相対湿度）の雰囲気下で100時間保持しても変形しないという条件をクリアする必要がある。

【 0 0 0 7 】

現在、生分解性を有するプラスチック（生分解性樹脂）は、それぞれ分子骨格に脂肪族系ポリエステル樹脂を有するもの、ポリビニルアルコールを有するもの、多糖類を有するものの三種に大別することができる。ここで、「生分解性プラスチック」とは、使用後は自然界において微生物が関与して低分子化合物、最終的には水と二酸化炭素に分解するプラスチックであると定義されている（生分解性プラスチック研究会、ISO/TC-207/SC3）。

【 0 0 0 8 】

これらの生分解性プラスチックのうち、脂肪族系ポリエステル樹脂（生分解性

ポリエステル樹脂）は一般に融点が低く、実用的な成形品に適した物性、特に耐熱性が得られていない為、電子機器等の筐体に利用されていなかった。生分解性樹脂の耐熱性および弾性率を向上させるための結晶核剤としてリン酸系、ソルビトール系が知られているが、ポリプロピレンに対しては十分な効果があるものの、生分解性ポリエステル樹脂に対しては効果が不十分であった。

## 【 0 0 0 9 】

現時点では、生分解性プラスチックは脂肪族系ポリエステル樹脂を中心に、農林水産用資材（フィルム、植栽ポット、釣り糸、魚網等）、土木工事資材（保水シート、植物ネット等）、包装・容器分野（土、食品等が付着してリサイクルが難しい物）等に利用され始めている。

## 【 0 0 1 0 】

上記生分解性ポリエステル樹脂を始めとする生分解性プラスチックは、使用中には従来のプラスチックと同等の機能、例えば強度・耐水性・成型加工性や耐熱性を有し、且つ、廃棄時には自然界に一般に存在する微生物により速やかに分解される必要がある。

## 【 0 0 1 1 】

## 【発明が解決しようとする課題】

従来の生分解性プラスチックである、特別な添加剤を何も含まない脂肪族系ポリエステル樹脂は、機械的特性において単独での家電製品、筐体材料などへの適応は困難である。例えばポリ乳酸は、ガラス転移温度（ $T_g$ ：貯蔵弾性率が常温時の約  $1/10 \sim 1/100$  に低下する温度）が  $60^\circ\text{C}$  付近であり、 $60^\circ\text{C}$  以上においては貯蔵弾性率が常温時の約  $1 \times 10^9 \text{ Pa}$  から約  $1 \times 10^7 \text{ Pa}$  へと急激に低下する。そのため、機械的変形が起こりやすい。

## 【 0 0 1 2 】

本発明は上記問題点に鑑みなされたもので、その目的は、弾性率を向上させた生分解性樹脂組成物、この生分解性樹脂組成物からなる筐体材料、この生分解性樹脂組成物の製造方法および、この生分解性樹脂組成物の弾性率向上方法を提供することにある。

## 【 0 0 1 3 】



## 【課題を解決するための手段】

本発明の生分解性樹脂組成物は脂肪族系ポリエステル樹脂と、有機系の造核剤と、天然マイカとを、少なくとも含有することを特徴とする（請求項1）。前記有機系の造核剤としては、脂肪族カルボン酸アミドおよび脂肪族カルボン酸エステルから一種または二種以上を選んで配合することが望ましい（請求項2）。脂肪族系ポリエステル樹脂に対する天然マイカの配合量は、5.0～20.0重量%の範囲が好ましい（請求項3）。脂肪族系ポリエステル樹脂に対する有機系の造核剤の配合量は、0.5～5.0重量%の範囲が好ましい（請求項4）。脂肪族系ポリエステル樹脂の好ましい具体例としては、ポリ乳酸が挙げられる（請求項5）。

## 【0014】

一般に、生分解性樹脂をそのまま射出成形等で成形して作製した電気製品の筐体や、構造材では機械的強度が低いため、これを機械加工する際に変形が起きやすく、所望の形状・構造を有する筐体等を歩留り良く製造することが難しかった。また、たとえ機械加工時に変形が生じなくても、高温下に貯蔵した場合や、高温下での使用時に変形が発生しやすいという難点があった。

## 【0015】

これに対し、本発明の生分解性樹脂組成物では、生分解性樹脂に補強用成分として、有機系の造核剤および天然マイカを配合したので、生分解性樹脂素材の機械的強度（弾性率）が向上する。その結果、高温貯蔵時の寸法・形状安定性が向上し、この生分解性樹脂素材からなる筐体や構造材では、高温時に反りや寸法が変化しにくくなる。

## 【0016】

本発明の生分解性樹脂組成物は脂肪族系ポリエステル樹脂と、有機系の造核剤と、天然マイカと、前記脂肪族系ポリエステル樹脂の加水分解を抑制する添加剤とを含有することを特徴とする（請求項6）。前記加水分解を抑制する添加剤はカルボジイミド化合物が好ましい（請求項7）。また、前記加水分解抑制用添加剤の配合量は、脂肪族系ポリエステル樹脂量に対して0.1～2.0重量%の範囲が好ましい（請求項8）。

## 【 0 0 1 7 】

さらに、本発明の筐体材料は脂肪族系ポリエステル樹脂と、有機系の造核剤と、天然マイカとを少なくとも含有する生分解性樹脂組成物よりなることを特徴とする（請求項 9）。この場合の生分解性樹脂組成物としては、請求項 2～8 のいずれかに係るものが採用できる。

## 【 0 0 1 8 】

さらに、本発明に係る生分解性樹脂組成物の製造方法は、脂肪族系ポリエステル樹脂と、該脂肪族系ポリエステル樹脂に対して 5. 0～20. 0 重量%の天然マイカと、有機系の造核剤とを 150～200℃で混練することを特徴とする（請求項 10）。

## 【 0 0 1 9 】

さらに、本発明に係る生分解性樹脂組成物の弾性率向上方法は、脂肪族系ポリエステル樹脂と、有機系の造核剤と、天然マイカとを、少なくとも含有する生分解性樹脂組成物を 80～130℃の加温下で、30～180 秒間放置することを特徴とする（請求項 11）。この場合の生分解性樹脂組成物としては、請求項 2～8 のいずれかに係るものが採用できる。

## 【 0 0 2 0 】

さらに、本発明に係る生分解性樹脂組成物の弾性率向上方法は、脂肪族系ポリエステル樹脂と有機系の造核剤と天然マイカとを少なくとも含有する生分解性樹脂組成物を金型内に射出（例えば押出機を使用する）して射出成型物とし、次いで該金型内の前記射出成型物を 80～130℃で、30～180 秒間加温することを特徴とする（請求項 12）。この場合の生分解性樹脂組成物としては、請求項 2～8 のいずれかに係るものが採用できる。

## 【 0 0 2 1 】

さらに、本発明に係る生分解性樹脂組成物の弾性率向上方法は、脂肪族系ポリエステル樹脂と有機系の造核剤と天然マイカとを少なくとも含有する生分解性樹脂組成物を、高周波誘導加熱により内表面を昇温された金型内に射出して射出成型物とし、次いで該金型内の前記射出成型物を 80～130℃で、30～180 秒間加温することを特徴とする（請求項 13）。この場合の生分解性樹脂組成物

としては、請求項 2 ～ 8 のいずれかに係るものが採用できる。

【 0 0 2 2 】

【発明の実施の形態】

以下に、本発明を更に詳細に説明する。本発明に係る生分解性樹脂組成物は、微生物によって代謝されるポリエステル系のうち、成型性・耐熱性・耐衝撃性に富む脂肪族系ポリエステル樹脂を主成分とするものである。また天然マイカは、通常、アクリル樹脂、エポキシ樹脂またはウレタン樹脂をバインダーとして造粒した造粒マイカが用いられる。

【 0 0 2 3 】

上記脂肪族系ポリエステル樹脂としては、ポリ乳酸系脂肪族ポリエステル樹脂、具体的には、乳酸、りんご酸、グルコース酸等のオキシ酸の重合体またはこれらの共重合体、特にポリ乳酸に代表されるヒドロキシカルボン酸系脂肪族系ポリエステル樹脂を挙げることができる。

【 0 0 2 4 】

上記ポリ乳酸系脂肪族系ポリエステル樹脂は通常、環状ジエステルであるラクチド及び対応するラクトン類の開環重合による方法、いわゆるラクチド法により、またラクチド法以外では、乳酸直接脱水縮合法により、それぞれ得ることができる。

【 0 0 2 5 】

また、上記ポリ乳酸系脂肪族ポリエステル樹脂を製造するための触媒としては、錫、アンチモン、亜鉛、チタン、鉄、アルミニウム化合物を例示することができ、中でも錫系触媒、アルミニウム系触媒が好ましく、オクチル酸錫、アルミニウムアセチルアセテートが特に好適である。

【 0 0 2 6 】

上記ポリ乳酸系脂肪族ポリエステル樹脂の中でも、ラクチド開環重合により得られるポリ乳酸系脂肪族ポリエステル樹脂は、微生物によってポリ L 体 - 乳酸に加水分解されて L 体 - 乳酸になる。また、この L 体 - 乳酸は人体等に対して安全なものであることが確認されているため好ましい。しかし、本発明に係るポリ乳酸系脂肪族ポリエステル樹脂はこれに限定されることはなく、したがって、その

製造に使用するラクチドについても、L体限定されない。

【0027】

一方、本発明で使用する造核剤としては、80～300℃の融点または軟化点を有し、かつ約41.84～418.4 J/k/molの溶融エントロピーを有する有機化合物であり、その具体例としては、脂肪族カルボン酸アミド、脂肪族カルボン酸エステル、脂肪族カルボン酸、脂肪族アルコール等が挙げられ、脂肪族カルボン酸アミドが特に好ましい。

【0028】

上記脂肪族カルボン酸アミドとしては、融点あるいは軟化点が80～300℃の範囲にあり、溶融エントロピーが約41.84～418.4 J/k/molの範囲にあるものであれば、特に制限されない。なお、脂肪族カルボン酸アミドには、脂肪族アミドが含まれる（「10899の化学商品（1989年、化学工業日報社、第389頁）。

【0029】

また、上記脂肪族カルボン酸アミドとは、カルボニル炭素に窒素が結合した構造を少なくとも一つ含む化合物である。具体的には、通常アミド結合と呼ばれる結合を包含し、通常尿素結合と呼ばれる結合をも包含する。カルボニル炭素および、これに結合した窒素原子には水素原子あるいは脂肪族基がそれぞれ結合する。結合する脂肪族基は具体的には、狭義の脂肪族基のみならず、芳香族基、これらを組み合わせた基、またはこれらが酸素、窒素、硫黄、ケイ素、リンなどで結合された構造を有する残基からなる群をも包含し、さらに具体的には、上記のものに例えば水酸基、アルキル基、シクロアルキル基、アリル基、アルコシキル基、シクロアルコキシル基、アリルオキシル基、ハロゲン（F, Cl, Br等）基等が置換した構造を有する残基からなる群をも包含する。これらの置換基を適宜に選択することにより、造核剤としての効果を調整することができ、これにより本発明に係る、乳酸系ポリマーを始めとする脂肪族系ポリエステル樹脂からなる生分解性樹脂組成物の諸特性（耐熱性、機械的強度等）を調整することが可能である。

【0030】

脂肪族カルボン酸アミドの具体例としては、例えばラウリル酸アミド、パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、エルカ酸アミド、ベヘニン酸アミド、N-ステアリルステアリン酸アミド、メチロールステアリン酸アミド、メチロールベヘニン酸アミド、ジメトール油アミド、ジメチルラウリン酸アミド、ジメチルステアリン酸アミド等が挙げられる。その他、エチレンビスオレイン酸アミド、エチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、ヘキサメチレンビスオレイン酸アミド、ブチレンビスステアリン酸アミド、m-キシリレンビスステアリン酸アミド、m-キシリレンビス-1,2-ヒドロキシステアリン酸アミド、N, N'-ジオレイルアジピン酸アミド、N, N'-ジステアリルアジピン酸アミド、N, N'-ジステアリルイソフタル酸アミド、N, N'-ジステアリルテレフタル酸アミド、N-ブチル-N'ステアリル尿素、N-プロピル-N'ステアリル尿素、N-アリル-N'ステアリル尿素、N-ステアリル-N'ステアリル尿素等が挙げられる。

#### 【 0 0 3 1 】

以上の中では、エチレンビスステアリン酸アミド、パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、エルカ酸アミド、ベヘニン酸アミド、エチレンビスオレイン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、N-ステアリルステアリン酸アミド、m-キシリレンビスステアリン酸アミド、m-キシリレンビス-1,2-ヒドロキシステアリン酸アミドが特に好適である。

#### 【 0 0 3 2 】

また、本発明で使用する、上記生分解性の脂肪族系ポリエステル樹脂の加水分解を抑制するための添加剤としては、ポリエステル樹脂の末端官能基であるカルボン酸及び水酸基との反応性を有する化合物、例えばカルボジイミド化合物、イソシアネート化合物、オキソゾリン系化合物などが適用可能であるが、特に、カルボジイミド化合物がポリエステルと良く熔融混練でき、少量添加で加水分解を抑制できるため好適である。

#### 【 0 0 3 3 】

分子中に1個以上のカルボジイミド基を有するカルボジイミド化合物（ポリカルボジイミド化合物を含む）としては、例えば、触媒として有機リン系化合物ま

たは有機金属化合物を用い、各種ポリマーイソシアネートを約70℃以上の温度で、無溶媒または不活性溶媒中で脱炭酸縮合反応に付することにより合成することができるものが挙げられる。

#### 【0034】

上記カルボジイミド化合物に含まれるモノカルボジイミド化合物としては、ジシクロヘキシルカルボジイミド、ジイソプロピルカルボジイミド、ジメチルカルボジイミド、ジイソブチルカルボジイミド、ジオクチルカルボジイミド、ジフェニルカルボジイミド、ナフチルカルボジイミド等を例示することができ、これらの中では、特に工業的に入手が容易であるという点から、ジシクロヘキシルカルボジイミド或いは、ジイソプロピルカルボジイミドが好適である。

#### 【0035】

また、上記カルボジイミド化合物の生分解性プラスチックへの混合（配合）は、押出機を使用する溶融混練により行うことができる。なお、本発明の生分解性プラスチックの生分解速度は、配合するカルボジイミド化合物の種類、及び配合量により調節することができるので、目的とする製品に応じ、配合するカルボジイミド化合物の種類、及び配合量を決定すればよい。

#### 【0036】

##### 【実施例】

つぎに、本発明の実施例および比較例について説明する。図1、図2は特別な添加剤を含まないポリ乳酸に造核剤、天然マイカおよび加水分解抑制用添加剤を配合して得た生分解性樹脂組成物（実施例）と、これを配合しないポリ乳酸（比較例）についての、温度と貯蔵弾性率との関係を示すグラフである。

#### 【0037】

まず、貯蔵弾性率およびガラス転移温度 $T_g$ の測定方法を示す。

測定装置：レオメトリック社製の粘弾性アナライザー

サンプル片：長さ50mm×幅7mm×厚さ1mm

周波数：6.28 (rad/s)

測定開始温度：0℃

測定最終温度：160℃

昇温速度：5℃／min

歪：0.05%

【0038】

#### 比較例 1

ポリ乳酸であるレイシアH100J（三井化学製）のサンプル片では、図1に示すように、貯蔵弾性率 $E'$ がガラス転移温度 $T_g$ （60℃）付近から急激に低下し、100℃付近で最小値を示し、その後、貯蔵弾性率が急激に上昇し、120℃付近から140℃の範囲ではほぼ一定の値を示した。また、温度70℃～140℃での貯蔵弾性率は $1 \times 10^8$ 以下であった。

【0039】

#### 実施例 1

レイシアH100Jに、粒径40～50 $\mu$ mの天然マイカを造粒した造粒雲母粉41PU5（ウレタン樹脂バインダーを0.8重量%含む：山口雲母工業製）を10重量%と、加水分解抑制用添加剤としてカルボジライトH MV-10B（日清紡製）を1重量%と、有機系造核剤としてエチレンビスステアリン酸アミド（脂肪族カルボン酸アミド）を1重量%とを添加してミキシングし、設定温度180℃の一軸混練機にて熔融ブレンドした組成物をペレット化し、設定温度170℃のホットプレス機にて1mm厚の板材を作製した。そして、この板材から切り出したサンプル片の貯蔵弾性率を測定した。この実施例1のサンプルでは、図1に示すように、比較例1と違って $T_g$ （60℃）付近からの貯蔵弾性率の急激な低下は見られず、温度70℃～140℃での貯蔵弾性率が大幅に向上し、特に約100℃～約120℃では約 $1 \times 10^9$ となった。

【0040】

#### 実施例 2

実施例1のサンプル片を、120℃で60秒間エージングした。その結果、図1に示すように、60～100℃での貯蔵弾性率が実施例1に比べて大幅に向上した。

【0041】

#### 実施例 3

レイシアH100Jに、上記造粒雲母粉41PU5を10重量%と、加水分解抑制用添加剤としてカルボジライトH MV-10Bを1重量%と、有機系造核剤としてエルカ酸アミド（脂肪族カルボン酸アミド）を1重量%とを添加し、以下実施例1と同様にしてサンプル片を作製して貯蔵弾性率を測定した。この実施例3のサンプルでは、図2に示すように、比較例1に比べて貯蔵弾性率が大幅に向上した。

## 【0042】

## 実施例4

実施例3のサンプル片を、120℃で60秒間エージングした。その結果、図2に示すように、約70～約100℃での貯蔵弾性率が実施例3に比べて、更に向上した。

## 【0043】

## 実施例5

レイシアH100Jに、上記造粒雲母粉41PU5を10重量%と、加水分解抑制用添加剤としてカルボジライトH MV-10Bを1重量%と、有機系造核剤としてアセチルクエン酸トリブチル（脂肪族カルボン酸エステル）を1重量%とを添加し、以下実施例1と同様にしてサンプル片を作製し、これを120℃で60秒間エージングした。その結果、貯蔵弾性率が比較例1に比べて大幅に向上した（図略）。

## 【0044】

## 実施例6

レイシアH100Jに、上記造粒雲母粉41PU5を10重量%と、加水分解抑制用添加剤としてカルボジライトH MV-10Bを1重量%と、有機系造核剤としてアジピン酸ジイソデシル（脂肪族カルボン酸エステル）を1重量%とを添加し、以下実施例1と同様にしてサンプル片を作製し、これを120℃で60秒間エージングした。その結果、貯蔵弾性率が比較例1に比べて大幅に向上した（図略）。

## 【0045】

## 実施例7



実施例 1 で得られたペレットを用い、金型表面付近をコイルによる高周波誘導加熱により急激に 1 2 0℃に発熱させた金型内に樹脂温度 1 8 0℃にしたペレットを流し込み、成型し、徐々に冷却する。1 2 0℃の高温をかけることにより、射出成型時のエージングが起こり、弾性率の向上が認められた（図略）。

## 【 0 0 4 6 】

## 【発明の効果】

請求項 1 に係る生分解性樹脂組成物は、脂肪族系ポリエステル樹脂に有機系の造核剤と、天然マイカとを配合したものである。このため、本発明の生分解性樹脂組成物では機械的強度が向上し、機械加工時の変形や反り等が発生しにくくなるとともに、寸法安定性が向上する。このため、本発明の生分解性樹脂組成物によれば、機械的強度が十分な家電製品・電子機器等用の筐体を作製するための材料を提供することができる。すなわち、生分解性樹脂が脂肪族系ポリエステル樹脂であるため、家電製品や電子機器等用の筐体を始め、農林水産用資材、土木工事資材、包装・容器分野等に広く利用することができる。

## 【 0 0 4 7 】

請求項 2 に係る生分解性樹脂組成物では、有機系の造核剤として脂肪族カルボン酸アミドおよび脂肪族カルボン酸エステルから選ばれる一種または二種以上を配合したので、弾性率はさらに向上し、機械的強度も増強する。

## 【 0 0 4 8 】

請求項 3 に係る生分解性樹脂組成物では、脂肪族系ポリエステル樹脂に対する天然マイカの配合量を 5. 0 ～ 2 0. 0 重量%の範囲内としたので、弾性率の大幅な向上効果が得られる。上記配合量が 5. 0 重量%未満では弾性率の向上効果が不十分となる。上記配合量が 2 0. 0 重量%を超えると弾性率の向上効果が頭打ちになるうえ、天然マイカを均一に混練配合するのが難しくなる。また、混練物から得たペレットの表面がざらざらするようになり、このペレットからの成型品では表面の平滑性に劣るようになる。

## 【 0 0 4 9 】

請求項 4 に係る生分解性樹脂組成物では、脂肪族系ポリエステル樹脂に対する有機系造核剤の配合量を 0. 5 ～ 5. 0 重量%としたので、弾性率の大幅な向上

効果が得られる。配合量が 0.5 重量%未満では弾性率の向上効果が不十分となる。配合量が 5.0 重量%を超えると弾性率の向上効果が頭打ちになるうえ、脂肪族系ポリエステル樹脂に対する上記添加剤の相溶性が低下する結果、経時により造核剤が生分解性樹脂組成物の表面にしみ出てくる不具合が生じる。

## 【 0 0 5 0 】

請求項 5 に係る生分解性樹脂組成物では、脂肪族系ポリエステル樹脂としてポリ乳酸を用いたので、この生分解性樹脂組成物からの加水分解生成物の安全性が特に高いという利点がある。

## 【 0 0 5 1 】

請求項 6 に係る生分解性樹脂組成物は、脂肪族系ポリエステル樹脂と、有機系の造核剤と、天然マイカと、前記脂肪族系ポリエステル樹脂の加水分解を抑制する添加剤とを含有する。このため、生分解性樹脂組成物を素材とする成型品（製品）の用途・特性等に応じて、上記加水分解抑制用添加剤の種類や配合量を決定することで、種々の需要に対応した生分解性樹脂組成物からなる成型用材料を提供することができる。また、上記加水分解抑制用添加剤を適当量配合することにより高温時、特に生分解性樹脂のガラス転移温度以上の温度における弾性率が高まる。

## 【 0 0 5 2 】

請求項 7 に係る生分解性樹脂組成物では、加水分解を抑制する添加剤として、少量添加で顕著な効果をもたらすカルボジイミド化合物が配合されている。このため、生分解性樹脂組成物を素材とする成型品（製品）の用途・特性等に応じて、上記カルボジイミド化合物の種類や配合量を決定することで、種々の需要に対応した生分解性樹脂組成物からなる成型用材料を提供することができる。

## 【 0 0 5 3 】

請求項 8 に係る生分解性樹脂組成物では、生分解性樹脂の加水分解を抑制する添加剤の配合量が脂肪族系ポリエステル樹脂量に対して 0.1 ～ 2.0 重量%となっている。このため、高温時の弾性率向上効果が特に高まるとともに化学的安定性、例えば耐候性・耐光性・耐熱性が向上する。またこの範囲で生分解性樹脂と上記添加剤との相溶性が良くなり、混合状態が安定する。上記配合量が 0.1

重量%未満では上記添加剤による効果が不十分となり、2.0重量%を超えて添加しても耐加水分解性効果は上がらない。

## 【0054】

請求項9に係る筐体材料は、請求項1の生分解性樹脂組成物からなるため、機械的強度が十分な家電製品や電子機器等用の筐体を作製するため材料となりうるものである。また、本発明に係る生分解性樹脂組成物を用いた筐体材料からなる筐体では、廃棄時の処理方法の選択肢が多くなり、そのまま廃棄しても長期ゴミとして残らず、景観を損ねることもない。また、通常の樹脂のようにマテリアルリサイクルしても良い。さらに、本発明の生分解性樹脂組成物は重金属、有機塩素化合物等の有害物を含有していないので、廃棄しても、焼却しても有害物を発生する心配がない。さらに、生分解性樹脂が穀物資源を原料とする場合には、石油等の枯渇資源を使用する必要がないという利点もある。

## 【0055】

請求項10に係る生分解性樹脂組成物の製造方法は、脂肪族系ポリエステル樹脂と、該脂肪族系ポリエステル樹脂に対して5.0～20.0重量%の天然マイカと、有機系の造核剤とを、150～200℃で混練することを特徴とするものである。このため、この製造方法によれば、天然マイカと上記ポリエステル樹脂を均一に混練することができ、特性が均一で弾性率が大幅に向上した生分解性樹脂組成物を、簡単・簡便な混練装置・プロセスにより容易に得ることができ、この生分解性樹脂素材を射出成型等で成型することにより、優れた特性の成型品（射出成型品、押出成型品等）を安定して製造することができる。上記混練温度が150℃未満では混練が不十分となり、混練温度が200℃を超えると生分解性樹脂が熱分解しやすくなる。

## 【0056】

請求項11に係る生分解性樹脂素材の弾性率向上方法では、請求項1の生分解性樹脂組成物を80～130℃の加温下で、30～180秒間放置（エージング）するので、エージングしない場合に比べ、弾性率の向上効果が更に高まる。

## 【0057】

請求項12に係る生分解性樹脂素材の弾性率向上方法では、請求項1の生分解

性樹脂組成物を金型内に射出して射出成型物とし、次いで金型内の射出成型物を 80～130℃で、30～180秒間加温するものであり、また、請求項13に係る弾性率向上方法では、請求項1の生分解性樹脂組成物を、高周波誘導加熱により内表面を昇温された金型内に射出して射出成型物とし、次いで金型内の前記射出成型物を80～130℃で、30～180秒間加温するものであるから、それぞれ請求項11に係る弾性率向上方法を、簡便なプロセスで実施することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

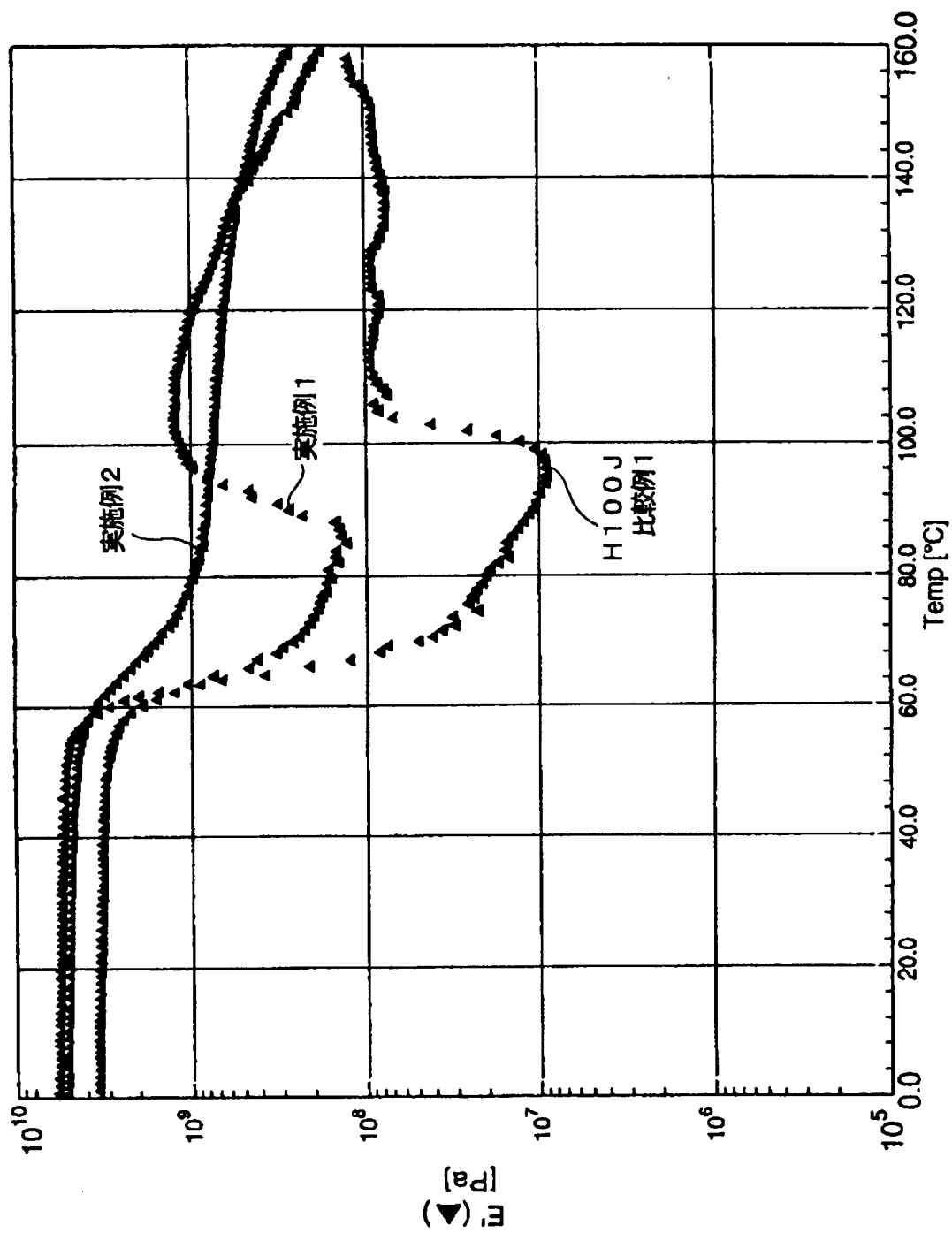
本発明の実施例および比較例に係るもので、ポリ乳酸に有機系造核剤、天然マイカおよびポリ乳酸の加水分解抑制用添加剤の配合して得た生分解性樹脂組成物（実施例1，2）と、これを配合しないポリ乳酸（比較例1）の、温度と貯蔵弾性率との関係を示すグラフである。

【図2】

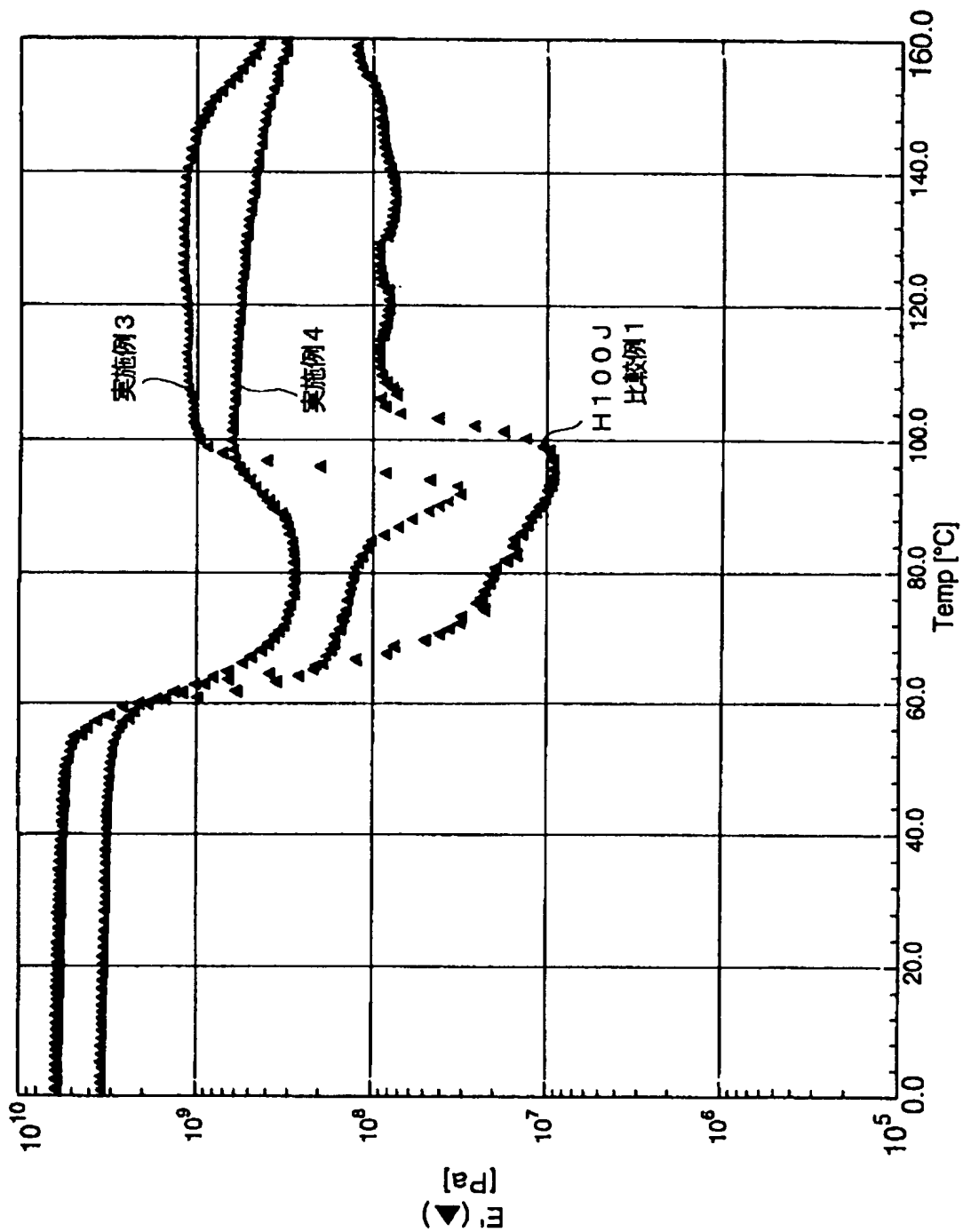
本発明の実施例および比較例に係るもので、ポリ乳酸に有機系造核剤、天然マイカおよびポリ乳酸の加水分解抑制用添加剤の配合して得た生分解性樹脂組成物（実施例3，4）と、これを配合しないポリ乳酸（比較例1）の、温度と貯蔵弾性率との関係を示すグラフである。

【書類名】 図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 弾性率を向上させた生分解性樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 脂肪族系ポリエステル樹脂であるポリ乳酸に、天然マイカを 5.0～20.0 重量%と、有機系の造核剤として脂肪族カルボン酸アミドを 0.5～5.0 重量%と、ポリ乳酸の加水分解抑制剤として、カルボジイミド化合物を 0.1～2.0 重量%とを配合する。実施例ではポリ乳酸（ $T_g$ : 60℃）に、天然マイカを造粒した粒径 40～50  $\mu m$  の造粒雲母粉を 10 重量%と、カルボジライトを 1 重量%と、有機系造核剤としてエチレンビスステアリン酸アミドを 1 重量%とを配合したところ、温度 70℃～140℃での貯蔵弾性率が大幅に向上し、特に約 100℃～約 120℃では約  $1 \times 10^9$  となった。本発明の生分解性樹脂組成物は家電製品、筐体材料などの素材として有用である。

【選択図】 図 1

特 2 0 0 0 - 3 7 2 4 2 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 2 1 8 5 ]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 3 0 日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都品川区北品川 6 丁目 7 番 3 5 号

氏 名 ソニー株式会社